

F ENT COOPERATION TREA.

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
United States Patent and Trademark
Office
Box PCT
Washington, D.C.20231
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 28 July 2000 (28.07.00)	
International application No. PCT/EP99/08462	Applicant's or agent's file reference O.Z.1182
International filing date (day/month/year) 05 November 1999 (05.11.99)	Priority date (day/month/year) 13 November 1998 (13.11.98)
Applicant COUFAL, Gerhard	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

20 April 2000 (20.04.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer Pascal Piriou</p> <p>Telephone No.: (41-22) 338.83.38</p>
--	--

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PARENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

KUNZ, Ekkehard
Agrolinz Melamin GmbH
St. Peter-Strasse 25
A-4021 Linz
AUTRICHE

Date of mailing (day/month/year) 31 October 2000 (31.10.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference O.Z.1182	
International application No. PCT/EP99/08462	International filing date (day/month/year) 05 November 1999 (05.11.99)

1. The following indications appeared on record concerning:		
<input checked="" type="checkbox"/> the applicant	<input checked="" type="checkbox"/> the inventor	<input type="checkbox"/> the agent <input type="checkbox"/> the common representative
Name and Address COUFAL, Gerhard Burgerstrasse 35 A-4060 Leonding Austria	State of Nationality AT	State of Residence AT
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:		
<input type="checkbox"/> the person	<input type="checkbox"/> the name	<input checked="" type="checkbox"/> the address <input type="checkbox"/> the nationality <input type="checkbox"/> the residence
Name and Address COUFAL, Gerhard Münchgasse 21 A-4060 Leonding Austria	State of Nationality	State of Residence
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary:		
4. A copy of this notification has been sent to:		
<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned	
<input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:	

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer Peggy Steunenberg
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

KUNZ, Ekkehard
VA TECH Patente GmbH
Stahlstrasse 21a
Postfach 2
A-4020 Linz
AUTRICHE

Date of mailing (day/month/year) 20 March 2001 (20.03.01)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference O.Z.1182	
International application No. PCT/EP99/08462	International filing date (day/month/year) 05 November 1999 (05.11.99)

1. The following indications appeared on record concerning:	
<input type="checkbox"/> the applicant	<input type="checkbox"/> the inventor <input checked="" type="checkbox"/> the agent <input type="checkbox"/> the common representative
Name and Address KUNZ, Ekkehard Agrolinz Melamin GmbH St. Peter-Strasse 25 A-4021 Linz Austria	State of Nationality
	State of Residence
	Telephone No. 0043-732-6914-3539
	Facsimile No. 0043-732-6914-2335
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:	
<input type="checkbox"/> the person <input type="checkbox"/> the name <input checked="" type="checkbox"/> the address <input type="checkbox"/> the nationality <input type="checkbox"/> the residence	
Name and Address KUNZ, Ekkehard VA TECH Patente GmbH Stahlstrasse 21a Postfach 2 A-4020 Linz Austria	State of Nationality
	State of Residence
	Telephone No. 43 732-6585-2850
	Facsimile No.
3. Further observations, if necessary:	
4. A copy of this notification has been sent to:	
<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer Ingrid Aulich
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38

THIS PAGE BLANK (USPTO)

M. H.

VERTRAG FÜR DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0.Z.1182	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 99/ 08462	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 05/11/1999	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 13/11/1998
Anmelder AGROLINZ MELAMIN GMBH et al.		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 2 Blätter.



Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.



Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das



in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.



zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.



bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.



bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.



Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.



Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ **Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen** (siehe Feld I).

3. ☐ **Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung** (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. —

wie vom Anmelder vorgeschlagen



weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.



weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.



keine der Abb.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C07D251/62 C07D251/60

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETERecherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C07D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 96 23778 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH) 8. August 1996 (1996-08-08) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1,2,7 ---	1
X	WO 96 20182 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH) 4. Juli 1996 (1996-07-04) in der Anmeldung erwähnt Anspruch 1; Beispiel 1 ---	1
A	WO 97 20826 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH ;CANZI LORENZO (IT); COUFAL GERHARD (IT); MU) 12. Juni 1997 (1997-06-12) Seite 8 -Seite 9 -----	

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

° Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

5. Januar 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

14/01/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

De Jong, B

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.

EP 99/08462

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9623778	A	08-08-1996	AT 402296 B	25-03-1997
			AT 18695 A	15-08-1996
			BR 9607332 A	25-11-1997
			CN 1172480 A	04-02-1998
			EP 0807107 A	19-11-1997
			HR 960044 A	31-12-1997
			JP 11506415 T	08-06-1999
			NZ 298425 A	29-04-1999
			PL 321596 A	08-12-1997
WO 9620182	A	04-07-1996	AT 402294 B	25-03-1997
			AT 239294 A	15-08-1996
			AT 176228 T	15-02-1999
			AU 692034 B	28-05-1998
			AU 4386196 A	19-07-1996
			BG 101594 A	27-02-1998
			BR 9510363 A	23-12-1997
			CA 2207059 A	04-07-1996
			CN 1171102 A	21-01-1998
			DE 59505010 D	11-03-1999
			EP 0799212 A	08-10-1997
			ES 2128798 T	16-05-1999
			HR 950607 A	31-10-1997
			HU 77060 A	02-03-1998
			JP 10511368 T	04-11-1998
			NO 972869 A	14-08-1997
			NZ 298387 A	29-04-1999
			PL 320789 A	27-10-1997
			SK 79297 A	08-10-1997
			TR 960596 A	21-07-1996
			US 5721363 A	24-02-1998
			ZA 9510900 A	24-06-1996
WO 9720826	A	12-06-1997	AT 403579 B	25-03-1998
			AT 199495 A	15-08-1997
			AU 709030 B	19-08-1999
			AU 1175597 A	27-06-1997
			BG 102504 A	30-04-1999
			BR 9611892 A	17-02-1999
			CA 2239542 A	12-06-1997
			CN 1203592 A	30-12-1998
			EP 0874832 A	04-11-1998
			HR 960575 A	31-12-1997
			NO 982251 A	15-05-1998
			NZ 324297 A	29-07-1999
			PL 327067 A	23-11-1998
			SK 74998 A	04-11-1998

THIS PAGE BLANK (USPTO)

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

17-1

REC'D 04 DEC 2000	
WIPO	PCT

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts O.Z.1182	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/08462	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 05/11/1999	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 13/11/1998
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07D251/62		
Anmelder AGROLINZ MELAMIN GMBH et al.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationale vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 7 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderische Tätigkeit und der gewerbliche Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 20/04/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 30.11.2000
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Stix, E Tel. Nr. +49 89 2399 8057 

THIS PAGE BLANK (USPTO)

I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

Beschreibung, Seiten:

1-9 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-11 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: , zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, dass das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, dass die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/08462

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	4,9,10,11
	Nein: Ansprüche	1-3,5-8
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-11
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-11
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:
siehe Beiblatt

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Zu Punkt I

Grundlage des Bescheides

Der Prüfung werden folgende **Anmeldungsunterlagen** zugrunde gelegt:

In der Fassung für die Vertragsstaaten:

AT BE CH DE DK ES FI FR GB GR IT IE LI LU MC NL PT SE

Beschreibung, Seiten:

1-9 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-11 ursprüngliche Fassung

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

- D1: WO 96 23778 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH) 8. August 1996 (1996-08-08) in der Anmeldung erwähnt
- D2: WO 96 20182 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH) 4. Juli 1996 (1996-07-04) in der Anmeldung erwähnt

Neuheit:

Vorliegende Anmeldung scheint die Erfordernisse des Artikels 33(2) PCT aus folgenden Gründen nicht zu erfüllen:

Das im Anspruch 1 beanspruchte Verfahren zur Herstellung von reinem Melamin, gekennzeichnet durch die Schritte, dass die in einem Hochdruckprozeß aus Harnstoff hergestellte Melaminschmelze unter Zufuhr von Ammoniak gekühlt wird, worauf

THIS PAGE BLANK (USPTO)

entweder nach a) oder b) gequenchet wird und das Melamin anschließend isoliert wird, wird durch Anspruch 1 aus D1 vorweggenommen, als in D1 eine "rasche" Abkühlung anschließend an eine Verweilzeit beschrieben wird. Innerhalb der Verweilzeit in D1 kann stufenweise gekühlt werden, die Verweilzeit kann in einem weiten Bereich variieren (siehe S. 2,3 Brückenparagraph). Raumtemperatur wird mittels Wasserkühlung, Kühlung durch flüssigen Ammoniak oder durch Mischen mit kalten Gasen erreicht (siehe S. 3, 1. Absatz). Als in vorliegendem Anspruch 1 "unter Zufuhr von Ammoniak auf eine Temperatur, die etwa 1 bis 50 °C über dem vom jeweiligen Ammoniakdruck abhängigen Schmelzpunkt " gekühlt wird, eine Verweilzeit bei dieser Temperatur jedoch nicht angegeben ist, scheint dieser Kühlschritt kein neues technisches Merkmal darzustellen, da bei der Abkühlung in D1 dieser Temperaturbereich auch im Falle "rascher" Abkühlung zwangsläufig durchlaufen wird. An dieser Stelle sei auf Punkt VIII verwiesen.

Auch die Verfahrensschritte des Anspruchs 1 aus D2 (Ausführungsformen: siehe z. B. Beispiel 11 und 12, S. 11) haben neuheitsschädlichen Charakter. So beschreibt Beispiel 11 die auf die Melaminherstellung folgenden Verfahrensschritte wie folgt: Verweilen lassen (ein fakultatives Merkmal der Anmeldung), Abkühlung mit definierter Kühlrate, Eintauchen in kaltes Wasser. Aus der allgemeinen Formulierung in Anspruch 1 der Variante a) geht nicht hervor, ob der Ausdruck "Quenchen" das in D2 beschriebene "Eintauchen in kaltes Wasser" ausschließt. Die Isolierung wird als implizites technisches Merkmal angesehen. Daher wird Anspruch 1 als nicht neu angesehen.

Vorliegende Ansprüche 2,3,5-9 werden als nicht neu angesehen, da die Anwesenheit von Ammoniak bei der Abkühlung (siehe D2, Anspruch 1, S. 13) sowie die Umkristallisation (siehe D2, S. 2, 1. Paragraph) in D2 beschrieben wird. Des weiteren scheinen die gesonderten Ausführungsformen, die sich auf den Verfahrensabschnitt der Variante a), die die Option beinhaltet, dass nur mit Wasser gekühlt wird, bzw. auf die Schritte vor der Variante a) beziehen, keine neuen Verfahrensparameter zu enthalten (zu "Wasserkühlung" siehe auch Punkt VIII).

Vorliegende Ansprüche 4,9,10,11 scheinen neu zu sein, da sie sich auf Verfahrensvariante b) bzw. auf Rückführungsmethoden beziehen.

Erfinderische Tätigkeit:

Vorliegende Anmeldung scheint aus folgenden Gründen nicht den Erfordernissen des

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Artikels 33(3) zu genügen:

Dokument D2 wird als nächster Stand der Technik angesehen, da es in den Beispielen ähnliche Reaktionsparameter verwendet und sich ebenfalls mit der Problematik der Verfahrensoptimierung zur Herstellung von reinem Melamin auseinandersetzt. Im Licht der Lehre besagten Dokuments, das gleichzeitig den Gegenstand des vorliegenden Anspruchs 1 vorwegnimmt, erscheint es naheliegend, einen kontrollierten Kühleffekt vor das Quenchen zu lagern, um somit den Reinheitsgrad des Produkts zu erhöhen. Die in Anspruch 1 beschriebenen alternativen Quenchmethoden, sowie die wässrige Aufarbeitung stellen Allgemeinwissen dar bzw. werden als technische Äquivalente zu D2 gesehen und scheinen keinen erfinderischen Beitrag zu vorliegender Methode zu liefern. Somit wird die Kombination von Reaktionsschritten in vorliegender Anmeldung als naheliegend angesehen. Ebenso erscheint es für den Fachmann naheliegend zu sein, Rückführungsmethoden, sei es rückgeführte Mutterlauge, Wärme anzuwenden. Die der vorliegenden Anmeldung zugrundeliegende Aufgabe muß daher in der Bereitstellung von neuen Verfahrensschritten mit unerwarteten Eigenschaften gegenüber dem nächsten Stand der Technik (D2) gesehen werden. In Abwesenheit von Vergleichsdaten oder anderen geeigneten Informationen ist es nicht möglich zu beurteilen, ob diese Aufgabe gelöst worden ist oder nicht. Sollten Vergleichstests durchgeführt werden, so müssen diese das Erfordernis größtmöglicher Übereinstimmung der technischen Merkmale erfüllen, und zwar derart, dass die überraschenden Eigenschaften glaubhaft auf das essentielle Unterscheidungsmerkmal zurückzuführen sind. Zum jetzigen Zeitpunkt ist nicht klar, welcher Verfahrensparameter als essentielles Merkmal zur Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit herangezogen werden soll.

In diesem Zusammenhang sei darauf hingewiesen, dass in Vergleichsdokument D2 Reinheitsstufen von 99,8 % beschrieben worden sind (siehe S. 2, 2. Absatz).

Gewerbliche Anwendbarkeit:

Keine Einwände

Zu Punkt VIII

B stimmt B m rkung n zur international n Anmeldung

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Gemäß Artikel 6 PCT sind folgende Beanstandungen zu machen: Das fakultative Merkmal des vorliegenden Anspruchs 1 "Verweilen, in einem Aging- Behälter" ist ein dehnbarer Begriff und umfaßt Druck-und Temperaturänderungen, ebenso wie die Kühlphase, die, wie schon unter V erwähnt, zeitlich nicht definiert ist. Es ist somit nicht klar, welche Parametereinstellungen der Verweilphase und welche der Kühlphase zugeordnet werden sollen, m. a. W. inwiefern sich die beiden Schritte überlappen, bzw. inwiefern eine Verweilphase des Standes der Technik einer Kühlphase der Anmeldung entspricht und vice versa.

Gleiches gilt für den in Anspruch 1 verwendeten Ausdruck "Quenchen", aus dem nicht mit absoluter Sicherheit hervorgeht, ob ein "Quenchen" in der Lösung beansprucht wird, im Gegensatz zu einer schlagartigen Abkühlung von außen. Durch die unklare Formulierung der technischen Merkmale des Anspruchs 1 ist eine unzweifelhafte Klärung der Neuheitsfrage derzeit nicht möglich (siehe Punkt V).

Die auf S. 4 angeführte Alternative des Wärmetauschers zur Abkühlung durch Ammoniakzufuhr ist nicht in Übereinstimmung mit der Verfahrensbeschreibung in Anspruch 1, und erfüllt daher nicht die Erfordernisse des Artikels 6 PCT.

Ein Verfahren zur Herstellung von "reinem" Melamin genügt ebenso nicht den Erfordernissen des Artikels 6 PCT, als es derzeit nicht ausgeschlossen ist, dass der Reinheitsgrad von Melamin ein erfindungswesentliches Merkmal darstellt, weshalb eine Präzisierung des Reinheitsgrades erforderlich wäre.

Dies gilt ebenso für den Ausdruck "etwa" in Verbindung mit einer Bereichsangabe.

Des weiteren sei angemerkt, dass bevorzugte, fakultative Ausführungsformen den Schutzbereich eines Anspruchs nicht einschränken. Gesonderte Ausführungsformen sollten zum Gegenstand von abhängigen Ansprüchen gemacht werden.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCTWELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : C07D 251/62, 251/60	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/29393 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 25. Mai 2000 (25.05.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/08462 (22) Internationales Anmeldedatum: 5. November 1999 (05.11.99) (30) Prioritätsdaten: A 1894/98 13. November 1998 (13.11.98) AT (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): AGROLINZ MELAMIN GMBH [AT/AT]; St. Peter-Strasse 25, A-4021 Linz (AT). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): COUFAL, Gerhard [AT/AT]; Burgerstrasse 35, A-4060 Leonding (AT). (74) Anwalt: KUNZ, Ekkehard; Agrolinz Melamin GmbH, St. Peter-Strasse 25, A-4021 Linz (AT).		(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i>
(54) Title: METHOD FOR PRODUCING PURE MELAMINE (54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON REINEM MELAMIN (57) Abstract <p>The invention relates to a method for producing pure melamine. According to this method, the melamine melt, which is produced from urea in a high-pressure process, is cooled and ammonia is added until it reaches a temperature of approximately 1 to 50 °C above the melting temperature of the melamine as dependent on the respective pressure of ammonia and then either a) quenched with water or an aqueous solution or suspension containing ammonia and/or melamine so that the melamine solidifies or b) quenched with cold liquid or gaseous ammonia, so that the melamine solidifies, the melamine then being cooled further with water or an aqueous solution or suspension containing ammonia and/or melamine and c) the melamine is then isolated.</p> (57) Zusammenfassung <p>Verfahren zur Herstellung von reinem Melamin, bei dem die in einem Hochdruckprozeß aus Harnstoff hergestellte Melaminschmelze unter Zufuhr von Ammoniak auf eine Temperatur, die etwa 1 bis 50 °C über dem vom jeweiligen Ammoniakdruck abhängigen Schmelzpunkt des Melamins liegt, gekühlt wird, worauf entweder a) mit Wasser oder einer wäßrigen, Ammoniak und/oder Melamin enthaltenden Lösung oder Suspension gequenchet und das Melamin verfestigt – oder b) mit kaltem flüssigem oder gasförmigem Ammoniak gequenchet wird, wobei sich das Melamin verfestigt, welches dann in einem zweiten Schritt mit Wasser oder einer wäßrigen Ammoniak und/oder Melamin enthaltenden Lösung oder Suspension weiter gekühlt und c) das Melamin anschließend isoliert wird.</p>		

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Verfahren zur Herstellung von reinem Melamin

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von reinem Melamin in einem Hochdruckprozeß, bei dem die Melaminschmelze vor der Verfestigung unter Zufuhr von Ammoniak gekühlt und anschließend wäßrig aufgearbeitet wird.

Die Herstellung von Melamin durch Pyrolyse von Harnstoff ist beispielsweise aus "Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Vol A16, 5th ed (1990), Seiten 171-185" bekannt. In dem darin beispielhaft beschriebenen Montedison-Prozeß wird Harnstoff in einem Reaktor bei 370 °C und 70 bar gemeinsam mit Ammoniak während 20 min zersetzt. Das dabei im wesentlichen aus einer Melaminschmelze, Ammoniak und CO₂ bestehende Reaktionsgemisch wird anschließend in einen Quencher auf 25 bar entspannt und bei 160 °C mit einer wäßrigen NH₃/CO₂-Lösung behandelt, wobei festes Melamin ausfällt. Um eventuell nicht umgesetzten Harnstoff oder Nebenprodukte zu zersetzen, wird die dabei erhaltene Rohmelamin-Suspension gegebenenfalls für einige Zeit im Quencher belassen. Anschließend wird die Melaminsuspension gegebenenfalls in einem Stripper von NH₃ und CO₂ befreit, durch Zugabe von Mutterlauge verdünnt, wobei das Melamin gelöst wird. Nach Zugabe von Natronlauge und Aktivkohlebehandlung wird das Melamin auskristallisiert.

In einem weiteren Melaminprozeß (Nissan-Prozeß) erfolgt die Harnstoffzersetzung bei 100 bar und 400 °C, wobei die eingesetzte Harnstoffschmelze vor der Melaminsynthese zum Auswaschen von Melamin und Harnstoff aus den Offgasen des Melaminreaktors verwendet wird. Die erhaltene Melaminschmelze wird, gegebenenfalls nach einem "aging"-Schritt, mit einer wäßrigen Ammoniaklösung gequencht, dabei gelöst und zur Zersetzung von

Verunreinigungen bei 180 °C verweilen gelassen. Nach Strippen des Ammoniaks und Filtrieren der Lösung wird das Melamin auskristallisiert. Gemäß US 3,637,686 wird die Melaminschmelze vor dem Quenchen mit wäßrigem Ammoniak in einem ersten Schritt mit kaltem flüssigem oder gasförmigem Ammoniak bei einem Druck von 5 bis 100 bar und einer Temperatur von 200 bis 270 °C gequencht, wobei sich das Melamin verfestigt.

Das bei der Melaminsynthese primär anfallende Rohmelamin, das je nach Herstellverfahren ca. 94 bis 97 Gew.% Melamin, sowie insbesondere Melam, Melem, Melon, Ureidomelamin, Ammelin und Ammelid als wesentliche Verunreinigungen enthält, ist jedoch wegen der nicht ausreichenden Qualität der damit herstellbaren Harze für die meisten Anwendungen nicht bzw. nur unzureichend geeignet. Um zu einem reinen Melamin zu gelangen sind zusätzliche weitere Verfahrensschritte, wie z.B. Umkristallisieren, notwendig.

Es stellte sich demnach die Aufgabe, ein einfacheres Verfahren zu finden, mit dem Melamin in besserer Reinheit sowie mit guten Ausbeuten erhalten werden kann. Erfindungsgemäß konnte dieses Ziel dadurch erreicht werden, daß die vom Melaminreaktor kommende Rohmelaminschmelze vor der Verfestigung und wäßrigen Aufarbeitung unter Aufnahme von weiterem Ammoniak bis nahe über den Schmelzpunkt abgekühlt wird.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist demnach ein Verfahren zur Herstellung von reinem Melamin, dadurch gekennzeichnet, daß die in einem Hochdruckprozeß aus Harnstoff hergestellte Melaminschmelze, gegebenenfalls nach Strippen der Offgase und gegebenenfalls nach Verweilen in einem Aging-Behälter, unter Zufuhr von Ammoniak auf eine Temperatur, die etwa 1 bis 50 °C

über dem vom jeweiligen Ammoniakdruck abhängigen Schmelzpunkt des Melamins liegt, gekühlt wird, worauf entweder

- a) mit Wasser oder einer wäßrigen, Ammoniak und/oder Melamin enthaltenden Lösung oder Suspension gequenchet und das Melamin verfestigt - oder
- b) mit kaltem flüssigem oder gasförmigem Ammoniak gequenchet wird, wobei sich das Melamin verfestigt, welches dann in einem zweiten Schritt mit Wasser oder einer wäßrigen Ammoniak und/oder Melamin enthaltenden Lösung oder Suspension weiter gekühlt und
- c) das Melamin anschließend isoliert wird.

In Melamin-Hochdruckprozessen wird Melamin bei Drücken von etwa 70 bis 800 bar und Temperaturen von mindestens etwa 370 °C in flüssiger Form als Schmelze erhalten. Die bei der Melaminsynthese entstehenden, insbesondere NH_3 und CO_2 enthaltenden Offgase können entweder vor oder nach dem Abkühlen der Schmelze abgetrennt werden. Vorteilhafterweise werden die Offgase durch Hindurchleiten durch eine Harnstoffschmelze gewaschen, wobei insbesondere mit den Offgasen mitgerissene Teilchen von Melamin bzw. von nicht umgesetztem Harnstoff ausgewaschen werden. Dabei wird die Harnstoffschmelze durch die heißen Offgase erwärmt und vorteilhafterweise zur Melaminsynthese in einen Melaminreaktor geführt, während die gereinigten Offgase vorteilhafterweise in einen Harnstoffreaktor geführt werden. Die Offgase können entweder direkt in den Harnstoffreaktor geführt werden, oder sie werden beispielsweise mit Hilfe von Ammoncarbonat- oder Ammoncarbamatlösungen, die beispielsweise in der Melaminanlage oder der Harnstoffanlage anfallen, kondensiert. Die dabei anfallende Wärme kann beispielsweise zum Vorwärmen des in der Harnstoffanlage eingesetzten Ammoniaks oder zur Produktion von Dampf verwendet werden.

Nach Abtrennen der Offgase kann die Melaminschmelze vorteilhafterweise gestrippt werden, beispielsweise mit NH_3 , wodurch vor allem restliches CO_2 entfernt wird. Weiters ist es vorteilhaft, die Melaminschmelze in einem Aging-Behälter verweilen zu lassen, wie beispielsweise in WO96/23778 oder WO96/20182 beschrieben. Die erfindungsgemäße Abkühlung auf die etwa 1 bis 50 °C über dem vom jeweiligen Ammoniakdruck abhängigen Schmelzpunkt des Melamins liegende Temperatur kann entweder über Wärmetauscher oder durch Zufuhr von kaltem flüssigem, gasförmigem oder überkritischem NH_3 in den Gasraum über der Schmelze erfolgen oder bevorzugt durch Einleiten in die Schmelze, bzw. durch eine Kombination dieser Kühlmaßnahmen, wobei eine gute Durchmischung, beispielsweise durch Durchleiten des NH_3 , eventuell durch zusätzliche Mischeinrichtungen, wie z.B. Rührer, Statikmischer etc. von Vorteil ist. Dabei wird im Idealfall eine mit NH_3 gesättigte Melaminschmelze erhalten. In Abhängigkeit von den Verfahrensbedingungen sowie von der Menge des zugeführten NH_3 können erfindungsgemäß jedoch auch beim jeweiligen Druck und der jeweiligen Temperatur mit NH_3 übersättigte oder untersättigte Melaminschmelzen erhalten werden. Die Schmelze wird bevorzugt auf eine Temperatur abgekühlt, die etwa 1 bis 30 °C über dem vom jeweiligen Ammoniakdruck abhängigen Schmelzpunkt des Melamins liegt. Als besonders günstig erweist es sich, wenn auf eine solche Temperatur gekühlt wird, die möglichst knapp über dem vom jeweiligen Ammoniakdruck abhängigen Schmelzpunkt des Melamins liegt. Bevorzugt erfolgt die Abkühlung während einer Zeit von etwa 1 min bis 10 h, besonders bevorzugt von etwa 1 min bis 1 h. Die Verweilzeit in diesem Temperaturbereich beträgt etwa 1 min bis 10 h, bevorzugt etwa 1 min bis 1 h. Der Ammoniakdruck während der Abkühlung liegt bevorzugt bei etwa 50 bis 1000 bar, wobei Drücke von etwa 50 bis 400 bar besonders bevorzugt sind. Dabei ist es vorteilhaft, wenn durch die Ammoniakzufuhr gleichzeitig eine Druckerhöhung erfolgt.

Die Schmelzekühlung kann beispielsweise im Aging-Behälter oder auch in einem eigenen geeigneten Behälter oder Wärmetauscher erfolgen.

Das im Anschluß an die Abkühlung der Schmelze erfolgende Quenchen erfolgt durch Vermischen der abgekühlten Melaminschmelze mit Wasser, einer wäßrigen Lösung oder Suspension (gemäß a) oder mit Ammoniak und anschließend mit Wasser, einer wäßrigen Lösung oder Suspension (gemäß b). Die Vermischung erfolgt besonders vorteilhaft und intensiv durch Versprühen oder Einleiten der einzelnen Substanzen, bzw. durch Versprühen oder Einleiten der Schmelze in die vorgelegte Lösung oder Suspension unter gleichzeitiger Druckminderung. Zum Quenchen der Melaminschmelze in Stufe a) kann besonders vorteilhaft und wirtschaftlich die bei der Verfestigung bzw. Kristallisation und Isolierung des Melamins anfallende Mutterlauge rückgeführt und wieder verwendet werden. Die Temperatur beim Quenchen der Melaminschmelze mit Wasser oder einer wäßrigen, Ammoniak und/oder Melamin enthaltenden Lösung oder Suspension gemäß Schritt a) liegt bevorzugt bei etwa 25 bis 300 °C, besonders bevorzugt bei etwa 50 bis 200 °C, der Druck bei etwa 1 bis 100 bar, besonders bevorzugt bei etwa 1 bis 50 bar. Die Temperatur stellt sich in Abhängigkeit von den Betriebsbedingungen im Quencher, insbesondere von Druck, Konzentrationen und Durchflußgeschwindigkeiten ein. Das Quenchen gemäß b) mit Ammoniak erfolgt bevorzugt bei etwa 200 bis 270 °C und einem Druck von etwa 1 bis 100 bar, besonders bevorzugt bei etwa 1 bis 50 bar, wobei anschließend in einem zweiten Kühschritt mit Wasser oder einer wäßrigen Ammoniak und/oder Melamin enthaltenden Lösung oder Suspension bevorzugt auf etwa 50 bis 200 °C weiter gekühlt wird. Das bei der Abkühlung erhaltene kristallisierte bzw. verfestigte Melamin wird anschließend durch Abtrennen der Mutterlauge, beispielsweise durch Filtration oder Zentrifugieren isoliert und dann getrocknet, wobei Melamin vor allem wegen des Wegfalls weiterer Reinigungsschritte in guter Ausbeute und mit guter Reinheit im Bereich von etwa 99 % erhalten wird.

Das Quenchen erfolgt vorteilhaft kontinuierlich in einem der Schmelzekühlung nachgeschalteten Quench-Behälter. Dabei tritt beispielsweise flüssiges Melamin mit einer Temperatur, die knapp über dem vom jeweiligen Ammoniakdruck abhängigen Schmelzpunkt bis etwa 370 °C liegt und einem Druck von etwa 100 bis 400 bar am oberen Teil in den Quench-Behälter ein und wird sowohl mit Wasser als auch mit der im Kreislauf rückgeführten wäßrigen Suspension von festem Melamin in einer wäßrigen Melaminlösung aus dem Quench-Behälter bzw. mit rückgeführter Mutterlauge, die ebenfalls oben in den Quench-Behälter eingesprüht werden, gequencht. Das eingesprühte Wasser besitzt beispielsweise eine Temperatur von etwa 25 bis 90 °C, die eingesprühte Suspension bzw. Mutterlauge eine Temperatur von etwa 25 bis 150 °C bei einem Druck von etwa 1 bis 10 bar. Gemäß diesem Beispiel wird die Temperatur im Quench-Behälter etwa konstant gehalten, die Melamin-Suspension im Quench-Behälter wird vorteilhafterweise gerührt, der nicht im Kreislauf rückgeführte Teil der Melamin-Suspension, die neben festem Melamin auch gelöstes Melamin und Ammoniak enthält, wird kontinuierlich am unteren Teil des Quench-Behälters abgezogen, das Melamin durch Filtration oder Zentrifugieren isoliert und getrocknet und die Mutterlauge teils rückgeführt, teils ausgeschleust.

Zur Erzielung höherer und höchster Reinheitsgrade kann das Melamin umkristallisiert werden. Dabei ist es auch möglich, das gemäß a) oder b) erhaltene Melamin, ohne vorherige Isolierung, direkt in der Suspension durch Zufuhr einer wäßrigen ammoniakalischen Lösung zu lösen, wobei besonders bevorzugt und wirtschaftlich die bei der Verfestigung bzw. Kristallisation des Melamins anfallende Mutterlauge rückgeführt und zum Lösen verwendet wird. Eventuell durch Hydrolyse gebildete Nebenprodukte, vor allem die Oxyaminotriazine, wie z.B. Ammelin und Ammelid, können gegebenenfalls durch Zugabe von Alkali, beispielsweise NaOH, in Lösung gehalten werden. Die Lösung wird gegebenenfalls verweilen gelassen, gegebenenfalls wird noch gelöstes NH_3

gestrippt und gegebenenfalls mit Aktivkohle behandelt. Anschließend wird filtriert, das Melamin auskristallisiert, beispielsweise durch weitere Abkühlung und/oder Verminderung des Druckes bzw. Anlegen eines Vakuums, von der Mutterlauge abgetrennt und getrocknet.

Das gemäß vorliegender Erfindung erhaltene Melamin besitzt im Vergleich zu herkömmlichem Melamin nach Quenchen mit Wasser eine höhere Reinheit, und die Ausbeute nach dem Umkristallisieren ist höher.

Im Anschluß an das Trocknen kann das Melamin zur weiteren Verbesserung der Qualität getempert werden. Das isolierte, gegebenenfalls umkristallisierte Melamin wird dabei bevorzugt unter NH_3 -Druck von etwa 5 bis 600 bar, bevorzugt von etwa 5 bis 100 bar und bei einer Temperatur von etwa 100 °C bis unterhalb des vom jeweiligen NH_3 -Druck abhängigen Schmelzpunktes des Melamins für eine Zeit von etwa 5 min bis 10 h, bevorzugt von etwa 5 min bis 5 h verweilen gelassen (getempert).

Beispiel 1

In einen Autoklaven mit 100 ml Volumen wurden 20 g Melamin mit einem Melamgehalt von 2 Gew. % und einem Melemgehalt von 1 Gew. % eingebracht, der Autoklav unter NH_3 -Zufuhr auf eine Temperatur von 370 °C bei einem NH_3 -Druck von 250 bar gebracht und 2 h bei dieser Temperatur und diesem Druck gehalten. Dann wurde unter NH_3 -Zufuhr während 1 h auf 320 °C abgekühlt, wobei der Druck von 250 bar gehalten wurde, 30 min bei dieser Temperatur gehalten und die Melaminschmelze anschließend in einen zweiten Autoklaven (1000 ml Volumen), in dem sich eine wäßrige Ammoniaklösung mit einer Temperatur von 159 °C bei einem Druck von 12 bar befanden, gesprüht. Dabei verfestigte sich das Melamin, die Temperatur im zweiten Autoklaven stieg auf 168 °C, der Druck auf 24 bar. Nach Abkühlen des Autoklaven, Filtrieren und Trocknen wurde Melamin mit einer Reinheit von 99,1 % erhalten.

Beispiel 2

In einen Autoklaven mit 100 ml Volumen wurden 20 g Melamin mit einem Melamgehalt von 2 Gew. % und einem Melemgehalt von 1 Gew. % eingebracht, der Autoklav unter NH_3 -Zufuhr auf eine Temperatur von 370 °C bei einem NH_3 -Druck von 250 bar gebracht und 2 h bei dieser Temperatur und diesem Druck gehalten. Dann wurde unter NH_3 -Zufuhr während 1 h auf 330 °C abgekühlt, wobei der Druck von 250 bar gehalten wurde, 30 min bei dieser Temperatur gehalten und die Melaminschmelze anschließend in einen zweiten Autoklaven (1000 ml Volumen), in dem sich eine wäßrige Ammoniaklösung mit einer Temperatur von 62 °C bei einem Druck von 1 bar befanden, gesprüht. Dabei verfestigte sich das Melamin, die Temperatur im zweiten Autoklaven stieg auf 81 °C, der Druck auf 4 bar. Nach Abkühlen des Autoklaven, Filtrieren und Trocknen wurde Melamin mit einer Reinheit von 98,8 % erhalten.

Beispiel 3

In einen Autoklaven mit 100 ml Volumen wurden 20 g Melamin mit einem Melamgehalt von 2 Gew. % und einem Melemgehalt von 1 Gew. % eingebracht, der Autoklav unter NH_3 -Zufuhr auf eine Temperatur von 370 °C bei einem NH_3 -Druck von 250 bar gebracht und 2 h bei dieser Temperatur und diesem Druck gehalten. Dann wurde unter NH_3 -Zufuhr während 1 h auf 350 °C abgekühlt, wobei der Druck von 250 bar gehalten wurde, 30 min bei dieser Temperatur gehalten und die Melaminschmelze anschließend in einen zweiten Autoklaven (1000 ml Volumen), in dem sich eine wäßrige Ammoniaklösung mit einer Temperatur von 63 °C bei einem Druck von 1 bar befanden, gesprüht. Dabei verfestigte sich das Melamin, die Temperatur im zweiten Autoklaven stieg auf 88 °C, der Druck auf 4 bar. Nach Abkühlen des Autoklaven, Filtrieren und Trocknen wurde Melamin mit einer Reinheit von 98,6 % erhalten.

Vergleichsbeispiel 1

In einen Autoklaven mit 100 ml Volumen wurden 20 g Melamin mit einem Melamgehalt von 2 Gew. % und einem Melemgehalt von 1 Gew. % eingebracht, der Autoklav unter NH_3 -Zufuhr auf eine Temperatur von 370 °C bei einem NH_3 -Druck von 250 bar gebracht und 2 h bei dieser Temperatur und diesem Druck gehalten. Dann wurde die Melaminschmelze in einen zweiten Autoklaven (1000 ml Volumen), in dem sich eine wäßrige Ammoniaklösung mit einer Temperatur von 62 °C bei einem Druck von 1 bar befanden, gesprüht. Dabei verfestigte sich das Melamin, die Temperatur im zweiten Autoklaven stieg auf 94 °C, der Druck auf 5 bar. Nach Abkühlen des Autoklaven, Filtrieren und Trocknen wurde Melamin mit einer Reinheit von 97,5 % erhalten.

Ansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von reinem Melamin, dadurch gekennzeichnet, daß die in einem Hochdruckprozeß aus Harnstoff hergestellte Melaminschmelze, gegebenenfalls nach Strippen der Offgase und gegebenenfalls nach Verweilen in einem Aging-Behälter, unter Zufuhr von Ammoniak auf eine Temperatur, die etwa 1 bis 50 °C über dem vom jeweiligen Ammoniakdruck abhängigen Schmelzpunkt des Melamins liegt, gekühlt wird, worauf entweder
 - a) mit Wasser oder einer wäßrigen, Ammoniak und/oder Melamin enthaltenden Lösung oder Suspension gequench und das Melamin verfestigt - oder
 - b) mit kaltem flüssigem oder gasförmigem Ammoniak gequench wird, wobei sich das Melamin verfestigt, welches dann in einem zweiten Schritt mit Wasser oder einer wäßrigen Ammoniak und/oder Melamin enthaltenden Lösung oder Suspension weiter gekühlt und
 - c) das Melamin anschließend isoliert wird.
2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Abkühlung der Melaminschmelze auf die Temperatur, die etwa 1 bis 50 °C über dem Schmelzpunkt des Melamins liegt, durch Einleiten von kaltem flüssigem oder gasförmigem Ammoniak erfolgt.
3. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das gemäß a) oder b) erhaltene, als Suspension vorliegende Melamin, durch Zufuhr einer wäßrigen ammoniakalischen Lösung, bevorzugt einer rückgeführten bei der Kristallisation anfallenden Mutterlauge gelöst, die Lösung gegebenenfalls mit NaOH versetzt, gegebenenfalls verweilen

gelassen, gegebenenfalls das gelöste Ammoniak gestrippt, anschließend filtriert und das Melamin auskristallisiert und isoliert wird.

4. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Melaminschmelze in Stufe a) durch rückgeführte, bei der Kristallisation anfallende Mutterlauge gequenchet wird.
5. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Melaminschmelze bei einem Ammoniakdruck von etwa 50 bis 1000 bar unter Zufuhr von Ammoniak auf eine Temperatur, die etwa 1 bis 50 °C über dem Schmelzpunkt des Melamins liegt, abgekühlt wird.
6. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Melaminschmelze auf eine Temperatur, die etwa 1 bis 30 °C über dem Schmelzpunkt des Melamins liegt, abgekühlt wird.
7. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Melaminschmelze durch Einleiten von Ammoniak während etwa 1 min bis 10 h auf eine Temperatur, die etwa 1 bis 50 °C über dem Schmelzpunkt des Melamins liegt, abgekühlt wird.
8. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß in Stufe a) bei einer Temperatur von etwa 25 °C bis 300 °C, bevorzugt von etwa 50 °C bis 200 °C und einem Druck von etwa 1 bis 100 bar, bevorzugt von etwa 1 bis 50 bar gequenchet wird.
9. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß in Stufe b) bei einer Temperatur von etwa 200 °C bis 270 °C und einem

Druck von etwa 1 bis 100 bar, bevorzugt etwa 1 bis 50 bar gequenchet wird und dann im zweiten Schritt auf etwa 50 °C bis 200 °C weiter gekühlt wird.

10. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß aus den Offgasen des Melaminreaktors Melamin und Harnstoff mittels einer Harnstoffschmelze ausgewaschen werden, die sich dabei gleichzeitig erwärmt und anschließend die Harnstoffschmelze zur Melaminsynthese in einen Melaminreaktor und die Offgase in einen Harnstoffreaktor geführt werden.
11. Verfahren gemäß Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß die von Melamin und Harnstoff befreiten Offgase, gegebenenfalls unter Zuhilfenahme von Ammoncarbonatlösung und/oder Ammoncarbamatlösung, die aus einer Harnstoffanlage oder der Melaminanlage abgezogen werden, kondensiert werden und die anfallende Wärme zum Vorwärmen des in der Harnstoffanlage eingesetzten flüssigen Ammoniaks, bzw. zur Produktion von Dampf verwendet wird.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/08462

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07D251/62 C07D251/60

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 96 23778 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH) 8 August 1996 (1996-08-08) cited in the application claims 1,2,7 ---	1
X	WO 96 20182 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH) 4 July 1996 (1996-07-04) cited in the application claim 1; example 1 ---	1
A	WO 97 20826 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH ;CANZI LORENZO (IT); COUFAL GERHARD (IT); MU) 12 June 1997 (1997-06-12) page 8 -page 9 -----	

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

5 January 2000

Date of mailing of the international search report

14/01/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

De Jong, B

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/08462

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9623778 A	08-08-1996	AT 402296 B	25-03-1997
		AT 18695 A	15-08-1996
		BR 9607332 A	25-11-1997
		CN 1172480 A	04-02-1998
		EP 0807107 A	19-11-1997
		HR 960044 A	31-12-1997
		JP 11506415 T	08-06-1999
		NZ 298425 A	29-04-1999
		PL 321596 A	08-12-1997
WO 9620182 A	04-07-1996	AT 402294 B	25-03-1997
		AT 239294 A	15-08-1996
		AT 176228 T	15-02-1999
		AU 692034 B	28-05-1998
		AU 4386196 A	19-07-1996
		BG 101594 A	27-02-1998
		BR 9510363 A	23-12-1997
		CA 2207059 A	04-07-1996
		CN 1171102 A	21-01-1998
		DE 59505010 D	11-03-1999
		EP 0799212 A	08-10-1997
		ES 2128798 T	16-05-1999
		HR 950607 A	31-10-1997
		HU 77060 A	02-03-1998
		JP 10511368 T	04-11-1998
		NO 972869 A	14-08-1997
		NZ 298387 A	29-04-1999
		PL 320789 A	27-10-1997
		SK 79297 A	08-10-1997
		TR 960596 A	21-07-1996
		US 5721363 A	24-02-1998
		ZA 9510900 A	24-06-1996
WO 9720826 A	12-06-1997	AT 403579 B	25-03-1998
		AT 199495 A	15-08-1997
		AU 709030 B	19-08-1999
		AU 1175597 A	27-06-1997
		BG 102504 A	30-04-1999
		BR 9611892 A	17-02-1999
		CA 2239542 A	12-06-1997
		CN 1203592 A	30-12-1998
		EP 0874832 A	04-11-1998
		HR 960575 A	31-12-1997
		NO 982251 A	15-05-1998
		NZ 324297 A	29-07-1999
		PL 327067 A	23-11-1998
		SK 74998 A	04-11-1998

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/08462

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C07D251/62 C07D251/60

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie ³	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 96 23778 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH) 8. August 1996 (1996-08-08) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1,2,7 ----	1
X	WO 96 20182 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH) 4. Juli 1996 (1996-07-04) in der Anmeldung erwähnt Anspruch 1; Beispiel 1 ----	1
A	WO 97 20826 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH ;CANZI LORENZO (IT); COUFAL GERHARD (IT); MU) 12. Juni 1997 (1997-06-12) Seite 8 -Seite 9 -----	

☐

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒

Siehe Anhang Patentfamilie

³ Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen:

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

5. Januar 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

14/01/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

De Jong, B

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

inter. nationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/08462

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9623778 A	08-08-1996	AT 402296 B	25-03-1997
		AT 18695 A	15-08-1996
		BR 9607332 A	25-11-1997
		CN 1172480 A	04-02-1998
		EP 0807107 A	19-11-1997
		HR 960044 A	31-12-1997
		JP 11506415 T	08-06-1999
		NZ 298425 A	29-04-1999
		PL 321596 A	08-12-1997
WO 9620182 A	04-07-1996	AT 402294 B	25-03-1997
		AT 239294 A	15-08-1996
		AT 176228 T	15-02-1999
		AU 692034 B	28-05-1998
		AU 4386196 A	19-07-1996
		BG 101594 A	27-02-1998
		BR 9510363 A	23-12-1997
		CA 2207059 A	04-07-1996
		CN 1171102 A	21-01-1998
		DE 59505010 D	11-03-1999
		EP 0799212 A	08-10-1997
		ES 2128798 T	16-05-1999
		HR 950607 A	31-10-1997
		HU 77060 A	02-03-1998
		JP 10511368 T	04-11-1998
		NO 972869 A	14-08-1997
		NZ 298387 A	29-04-1999
		PL 320789 A	27-10-1997
		SK 79297 A	08-10-1997
		TR 960596 A	21-07-1996
		US 5721363 A	24-02-1998
		ZA 9510900 A	24-06-1996
WO 9720826 A	12-06-1997	AT 403579 B	25-03-1998
		AT 199495 A	15-08-1997
		AU 709030 B	19-08-1999
		AU 1175597 A	27-06-1997
		BG 102504 A	30-04-1999
		BR 9611892 A	17-02-1999
		CA 2239542 A	12-06-1997
		CN 1203592 A	30-12-1998
		EP 0874832 A	04-11-1998
		HR 960575 A	31-12-1997
		NO 982251 A	15-05-1998
		NZ 324297 A	29-07-1999
		PL 327067 A	23-11-1998
		SK 74998 A	04-11-1998